

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 09-092515
 (43)Date of publication of application : 04.04.1997

(51)Int.CI. H01F 1/08
 H01F 1/053

(21)Application number : 07-273471 (71)Applicant : SUMITOMO SPECIAL METALS CO LTD

(22)Date of filing : 26.09.1995 (72)Inventor : MINO NOBUTSUGU
 ASANO MASAHIRO
 TSUJIMOTO HIDEJI

(54) ANISOTROPIC BONDED MAGNET

(57)Abstract:

PROBLEM TO BE SOLVED: To decrease the porosity of a bonded magnet by a method wherein, before compounding resin into magnet powder as a binder or simultaneously with the compounding or after compounding, a specific quantity of fine ferrite magnet powder is mixed.

SOLUTION: An anisotropic bonded magnet is composed of an anisotropic R-Fe-B magnet powder, having a texture of recrystallized grains consisting of R2Fe14B tetragonal phase of average recrystallized grain diameter of 0.05 to 50 μ m, the ferrite magnetic powder of 0.5 to 50wt.% based on the total quantity of magnet powder and the resin of 1 to 10wt%. The pores of the magnet powder are filled with ferrite magnet powder, the pores being the pores of the bonded magnet in this anisotropic bonded magnet. As a result, cracks are not generated when a molding operation is conducted, and an anisotropic bonded magnet, having excellent heat resistance, weather resistance, Br, (BH) max and squareness, can be obtained.

LEGAL STATUS

[Date of request for examination] 11.09.2002

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of extinction of right]

Copyright (C); 1998,2003 Japan Patent Office

(19)日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11)特許出願公開番号

特開平9-92515

(43)公開日 平成9年(1997)4月4日

(51)Int.Cl.⁶
H 01 F 1/08
1/053

識別記号

序内整理番号

F I
H 01 F 1/08
1/04

技術表示箇所
A
H

審査請求 未請求 請求項の数1 FD (全6頁)

(21)出願番号 特願平7-273471
(22)出願日 平成7年(1995)9月26日

(71)出願人 000183417
住友特殊金属株式会社
大阪府大阪市中央区北浜4丁目7番19号
(72)発明者 三野 修嗣
大阪府三島郡島本町江川2丁目15-17 住
友特殊金属株式会社山崎製作所内
(72)発明者 浅野 正宏
大阪府三島郡島本町江川2丁目15-17 住
友特殊金属株式会社山崎製作所内
(72)発明者 辻本 秀治
大阪府三島郡島本町江川2丁目15-17 住
友特殊金属株式会社山崎製作所内
(74)代理人 弁理士 押田 良久

(54)【発明の名称】 異方性ボンド磁石

(57)【要約】

【課題】 成形時に磁石粉末に割れを生ずることなく、耐熱性、耐候性と共に磁気特性のすぐれた異方性ボンド磁石の提供。

【解決手段】 R-F e-B系合金鉄塊あるいは前記鉄塊を粉碎して得られた粗粉碎粉を、特定の熱処理条件のH₂処理法により、特定の平均再結晶粒径を有する正方晶のR₂F₁₄B相の再結晶粒集合組織を有する異方性磁石粉末となし、バインダーの樹脂との配合混合前、あるいは配合混合と同時に配合混合後に微細なフェライト磁石粉末を所定量配合、混合し、成形固化すると、フェライト磁石粉末は成形時に磁石粉末間隙に優先的に充填され、ボンド磁石中の空孔率が減少して磁石内へのO₂、H₂Oの侵入が抑制されるのに加えて、成形時に磁石粉末の割れを抑制でき、ボンド磁石中の非常に活性な金属界面が減少するので耐熱性、耐候性は一段と向上し、同時にB_r、(B H)_{max}、角型性が向上する。

【特許請求の範囲】

【請求項1】 平均再結晶粒径が0.05μm～50μmのR₁Fe₁B正方晶相からなる再結晶粒の集合組織を有する異方性R-F₁e-B系磁石粉末と、前記磁石粉末との合計に対して0.5～50wt%のフェライト磁石粉末と1～10wt%の樹脂とからなる異方性ボンド磁石。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】この発明は、耐熱性、耐候性と共に磁気特性、特に残留磁束密度（以下B_rといふ）、最大磁気エネルギー積（以下（BH）_{max}といふ）および角型性のすぐれた異方性ボンド磁石に係り、R-F₁e-B系合金铸塊あるいは前記铸塊を粉碎して得られた粗粉碎粉を特定の熱処理条件のH₁処理法により、特定の平均再結晶粒径を有する正方晶のR₁Fe₁B相の再結晶粒集合組織を有する異方性磁石粉末となし、これに特定量の微細なフェライト磁石粉末およびバインダーの樹脂を配合混合後、成形して得られた耐熱性、耐候性並びにB_r、（BH）_{max}、角型性のすぐれた異方性ボンド磁石に関する。

【0002】

【従来の技術】一般にボンド磁石は焼結磁石に比して、磁気特性では劣るにもかかわらず、機械的強度にすぐれ、且つ形状の自由度が高いこと等より、近年、その利用範囲が急速に拡大している。かかるボンド磁石は、磁石粉末と有機バインダー、金属バインダー等により結合して成形されるが、ボンド磁石の磁気特性は使用する磁石粉末の磁気特性に左右される。

【0003】ボンド磁石用磁石粉末としては、（1）R-F₁e-B系铸塊を機械的粉碎法、あるいはH₁吸蔵崩壊法により得られた磁石粉末や、あるいは、（2）液体急速冷法やアトマイズ法によって、溶融合金から超急速冷して得られた磁石粉末が利用されている。

【0004】前者の（1）磁石粉末では、R₁Fe₁B相が粒内破壊して粉碎されるので、R₁Fe₁B相がRリッヂ相で囲まれた組織にならず、R₁Fe₁B相の一部にRリッヂ相が一部付着した組織となり、また、粉碎時に磁石粉末に歪が残留するため、粉碎のままでは保磁力iH_cは3kOe以下に低下し、歪取り熱処理した磁石粉末やR₁Fe₁B相粒界部にRリッヂ相を形成させる集合粉末とした磁石粉末でも、ボンド磁石用粉末として使用した場合、成型圧力の増加に伴って、ボンド磁石のiH_cは大幅に低下し、また、バインダーの硬化時にも磁気特性が低下する欠点がある。

【0005】一方、後者の（2）磁石粉末の場合は、個々のR₁Fe₁B相の結晶粒の結晶方向が任意で粉末の磁気特性が等方性であるため、ボンド磁石自体も等方性であるため、高磁気特性が望めず、実用的には用途が制限される問題がある。

【0006】また、低価格かつ、高性能なボンド磁石を得るためにフェライト磁石粉末に高性能のR-F₁e-B系磁石粉末を添加配合した高性能ボンド磁石が提案されているが、前記R-F₁e-B系磁石粉末は超急速冷粉、あるいは铸塊粉碎粉の等方性の磁石粉末であり、磁気特性の改善向上は小さかった（特開昭61-284906号、特開昭63-287003号、特開平2-78204号、特開平3-181104号、特開平3-222303号）。

【0007】

【発明が解決しようとする課題】そこで、最近、異方性ボンド用磁石粉末として、R-F₁e-B系合金铸塊あるいは粉碎後の粗粉碎粉を特定の熱処理条件のH₁処理法により、R₁Fe₁B正方晶相からなる再結晶集合組織となした異方性R-F₁e-B系磁石粉末が提案されている（特開平1-132106号）。

【0008】前記異方性磁石粉末を用いて異方性ボンド磁石を製造する方法としては、前記磁石粉末にバインダーとして溶剤にて液状化した樹脂を添加配合後、溶剤を蒸発させて前記粉末を乾燥後、圧縮成形し、さらにバインダー硬化のためのキュア熱処理する工程などが一般に知られている。

【0009】しかし、原料粉末の異方性磁石粉末は非常に酸化され易いえ、予め磁石粉末をカップリング処理等で粉末表面を被覆しても、成形時の応力によって磁石粉末には割れが発生し、活性な金属面が露出してより酸化され易くなり、また、成形したボンド磁石は密度が低くて空孔部が多く、前記空孔部にO₂、H₂Oが容易に侵入してボンド磁石が酸化し、磁気特性が時間とともに劣化する問題があった。さらに成形時に磁石粉末が割れることは、磁石粉末へ多量の歪を導入することを意味し、保磁力および角型性の劣化を生じる要點からも好ましくなかった。

【0010】この発明は、上述の異方性ボンド磁石の問題を解消し、成形時に磁石粉末に割れを生ずることなく、耐熱性、耐候性と共に磁気特性、特にB_r、（BH）_{max}および角型性のすぐれた異方性ボンド磁石の提供を目的としている。

【0011】

【課題を解決するための手段】従来の異方性ボンド磁石の問題点を解決すべく、発明者らは、成形したボンド磁石中の空孔部を減少させる方法について、種々検討を加えた結果、前記磁石粉末にバインダーとして樹脂を配合混合する前、もしくは配合混合と同時に、あるいは配合混合した後に、特定量の微細なフェライト磁石粉末を配合混合することにより、フェライト磁石粉末は成形時に磁石粉末間隙、あるいは薄く樹脂にて被覆された磁石粉末間隙に優先的に充填され、かかる現象により、ボンド磁石中の空孔率が減少すること、また、磁石粉末間隙を占めるフェライト磁石粉末は成形時に生じる磁石粉末局

部への応力集中を緩和し、磁石粉末の割れを抑制することを知見した。

【0012】また、発明者らは、1) 空孔部の減少によって、磁石内部へのO₂、H₂Oの侵入が防止され、耐熱性、耐候性が顕著に向ふること、2) 従来空孔部であった部分がフェライト磁石粉末によって、置換されるため、そのため磁気特性、とくにBr、(BH)_{max}が向上すること、3) さらに磁石粉末の割れ抑制によって、ボンド磁石中の非常に活性な金属破面が減少するので、耐熱性、耐候性は一段と向上し、4) また、歪の導入も抑制されるので、磁気特性、特に角型性が向上すること、5) かかる作用効果が相乗され、ボンド磁石の耐熱性、耐候性の向上、および磁気特性の改善向上に有効なることを知見し、この発明を完成した。

【0013】すなわち、この発明は、平均再結晶粒径が0.05μm～50μmのR₂Fe₁₄B正方晶相からなる再結晶粒の集合組織を有する異方性R-F₂-B系磁石粉末と、前記磁石粉末との合計に対して0.5～50wt%のフェライト磁石粉末と1～10wt%の樹脂とからなり、従来ボンド磁石の空隙部であった前記磁石粉末間隙にフェライト磁石粉末を充填させたことを特徴とする異方性ボンド磁石である。

【0014】

【発明の実施の形態】この発明において、R₂Fe₁₄B正方晶相からなる再結晶集合組織の磁石粉末は、R-F₂-B系合金鉄塊あるいは前記鉄塊を粗粉碎して得られた粗粒を均質化処理するか、または、均質化処理せずにH₂ガス雰囲気中で昇温し、温度750℃～950℃に30分～8時間のH₂ガス雰囲気中に保持した後、引き続いて温度750℃～950℃に5分～4時間の真空雰囲気中に保持した後、冷却し、粉碎して得られるものである。

【0015】かかる異方性R-F₂-B系磁石粉末の平均粒度を5μm～500μmに限定した理由は、5μm未満では酸化し易く作業中に燃える恐れがあり、また、500μmを超えると磁石粉末として実用的ではないので好ましくないことにあり、好ましい平均粒度は10μm～300μmである。

【0016】また、異方性R-F₂-B系磁石粉末の平均再結晶粒径は、0.05μm未満では着磁が困難となり、50μmを超えるとiHc(保磁力)が5kOe以下となり、磁気特性が低下するため、0.05μm～50μmの範囲とし、好ましい平均再結晶粒径は0.1μm～10μmである。

【0017】この発明において、磁石粉末に配合混合するフェライト磁石粉末の平均粒度は、0.5μm未満では実際の製造上困難であり、また、10μmを超えるとフェライト磁石粉末の磁気特性低下が大きく、また、成形時の空孔低減効果や、応力緩和効果、すなわち磁石粉末の割れ抑制効果が少なく、耐熱性、耐候性並びに磁気

特性向上の効果が少ないので好ましくなく、フェライト磁石粉末の粒度は0.5μm～10μmとする。好ましいフェライト磁石粉末の粒度は0.5μm～5μmである。

【0018】また、フェライト磁石粉末の配合量は、磁石粉末との合計に対して、0.5wt%未満では空孔率低減効果、すなわち耐熱性、耐候性ならびに磁気特性の改善効果が得られず、また50wt%を超えるとボンド磁石の磁気特性を劣化するので、0.5wt%～50wt%とする。好ましいフェライト磁石粉末の配合量は2wt%～30wt%である。

【0019】また、バインダーとしての樹脂の配合量は、1wt%未満ではボンド磁石の強度が十分に得られず、また10wt%を超えると磁気特性の劣化を招来するので好ましくないため、樹脂の配合量は1wt%～10wt%とする。樹脂としては、熱硬化性あるいは熱可塑性の公知の樹脂で良く、固状の樹脂は溶媒にて液状化バインダーとして使用してもよく、溶媒はボンド磁石の成型前に加熱揮発してもよい。また、ボンド磁石の成形は圧縮成形の他、射出成形や押し出し成形など公知の方法いずれでも良い。

【0020】この発明の磁石粉末に用いる希土類元素Rは、組成の10原子%～30原子%を占めるが、Nd、Pr、Dy、Ho、Tbのうち少なくとも1種、あるいはさらに、La、Ce、Sm、Gd、Er、Eu、Tm、Yb、Lu、Yのうち少なくとも1種を含むものが好ましい。また、通常Rのうち1種をもって足りるが、実用上は2種以上の混合物（ミッシュメタル、シジム等）を入手上の便宜等の理由により用いることができる。なお、このRは純希土類元素でなくてもよく、工業上入手可能な範囲で製造上不可避な不純物を含有するものでも差し支えない。

【0021】Rは、上記系磁石粉末における必須元素であって、10原子%未満では結晶構造がα-鉄と同一構造の立方晶組織となるため、高磁気特性、特に高保磁力が得られず、30原子%を超えるとRリッチな非磁性相が多くなり、残留磁束密度（Br）が低下してすぐれた特性の永久磁石が得られない。よって、Rは、10原子%～30原子%の範囲が望ましい。

【0022】Bは、上記系磁石粉末における必須元素であって、2原子%未満では菱面体構造が主相となり、高い保磁力（iHc）は得られず、28原子%を超えるとBリッチな非磁性相が多くなり、残留磁束密度（Br）が低下するため、すぐれた永久磁石が得られない。よって、Bは2原子%～28原子%の範囲が望ましい。

【0023】Feは、上記系磁石粉末において必須元素であり、65原子%未満では残留磁束密度（Br）が低下し、80原子%を超えると高い保磁力が得られないで、Feは65原子%～80原子%の含有が望ましい。また、Feの一部をCoで置換することは、得られる磁

石の磁気特性を損なうことなく、温度特性を改善することができるが、Co置換量がFeの20%を超えると、逆に磁気特性が劣化するため、好ましくない。Coの置換量がFeとCoの合計量で5原子%～15原子%の場合は、(Br)は置換しない場合に比較して増加するため、高磁束密度を得るために好ましい。

[0024] また、R、B、Feのほか、工業的生産上不可避の不純物の存在を許容でき、例えば、Bの一部を4.0wt%以下のC、2.0wt%以下のP、2.0wt%以下のS、2.0wt%以下のCuのうち少なくとも1種、合計量で2.0wt%以下で置換することにより、永久磁石の製造性改善、低価格化が可能である。

[0025] さらに、Al、Ti、V、Cr、Mn、Bi、Nb、Ta、Mo、W、Sb、Ge、Ga、Sn、Zr、Ni、Si、Zn、Hfのうち少なくとも1種は、磁石粉末に対してその保磁力、減磁曲線の角型性を改善あるいは製造性の改善、低価格化に効果があるため添加することができる。なお、添加量の上限は、ボンド磁石の(BH)_{max}を14MGOe以上とするには、(Br)が少なくとも8kG以上必要となるため、該条件を満たす範囲が望ましい。配合混合に用いるフェライト磁石粉末は、化学式MO·6Fe₂O₃ (M=Ba、Sr、Pb)で表されるM型、及び化学式2MO·BaO·8Fe₂O₃で表されるW型などいずれであってもよい。なお、この発明においては、フェライト磁石の他に、R-Fe-B系超急冷磁石粉末、R-Co系磁石粉末、R-Fe-N系磁石粉末を複合混合してもよい。

[0026]

【実施例】

実施例1

原料として真空溶解炉にて溶解铸造し、表1に組成を表すR-Fe-B系磁石用合金铸塊を得た。これらの合金铸塊を温度1120°C、時間10時間でAr雰囲気中にて均質化処理を行った。前記铸塊を加熱炉に挿入し、760TorrのH₂ガスとして、加熱炉内の温度を室温から温度850°Cに上昇し、引き続いて温度850°Cに3時間保持した後、850°Cに1時間保持して脱H₂を行って、真空中度1×10⁻³Torrになるまで排気冷却した。

[0027] その後、铸塊をAr雰囲気中で300μm以下になるまで粉碎して、R-Fe-B系磁石粉末を得た。得られた磁石粉末は平均結晶粒径0.5μmのR、Fe、B正方晶相からなる再結晶粒の集合組織を有する異方性磁石粉末であった。得られた平均粒径150μmの前記異方性磁石粉末に平均粒度1.4μmのストロンチウムフェライト(SrO·6Fe₂O₃)粉末を前記磁石粉末との合計に対して10wt%配合後、V型混合器にて30分間混合し、さらに、バインダーとして3wt%のエポキシ樹脂を配合混合後、真空乾燥し、12kOeの磁場中で成形圧7ton/cm²で成形後、温度1

70°Cに1時間保持して硬化し、異方性ボンド磁石を得た。

[0028] 得られた異方性ボンド磁石の磁気特性、角型性および空孔率と耐候性試験結果を表2に表す。ここで、空孔率は、磁石粉末、フェライト磁石粉末ならびに樹脂の密度と配合比、および成形したボンド磁石の実測密度から計算によって求めた。また、耐熱性、耐候性試験の試験条件は大気中で100°C×1000時間の条件で、試験中の磁束の経時変化を測定した。なお、磁束の経時変化試験方法は試験片を着磁した後、磁束を測定し、ついで大気中にて100°Cに1000時間放置後、再び試験片を着磁し磁束を測定し、再着磁によっても復元しない減磁率、すなわち永久的な減磁率を算出した。この永久的な減磁は磁石の腐食等による変質に起因するものであり、耐熱性、耐候性向上の判定指標となり得る。

[0029] 実施例2

実施例1にて得られた磁石粉末にバインダーとして3wt%のエポキシ樹脂を配合混合後、真空乾燥し、次いで、実施例1に記載のストロンチウムフェライト磁石粉末を前記磁石粉末との合計に対して10wt%配合混合する以外は、実施例1と同一の製造条件にて異方性ボンド磁石を作製し、得られた異方性ボンド磁石の磁気特性、空孔率および耐候性試験結果を表2に表す。

[0030] 実施例3

実施例1にて得られた組成No.2の磁石粉末に、実施例1に記載のストロンチウムフェライト磁石粉末を、前記磁石粉末との合計に対して0～50wt%の範囲で配合量を変えて混合する以外は実施例1と同一の製造条件にて異方性ボンド磁石を作成し、得られた異方性ボンド磁石の磁気特性を図1に、空孔率および耐候性試験結果を図2に表す。

[0031] 実施例4

実施例1にて得られた組成No.2の磁石粉末に、ポールミル粉碎時間を変えて作成した0.5μm、0.9μm、1.4μm、2.5μm、5.1μm、7.9μm、10.7μmの各平均粒径のストロンチウムフェライト磁石粉末をそれぞれ、前記磁石粉末との合計に対して10wt%配合混合する以外は実施例1と同一の製造条件にて異方性ボンド磁石を作成し、得られた異方性ボンド磁石の磁気特性を図3に、空孔率と耐候性試験結果を図4に示す。

[0032] 比較例1

実施例1にて得られた磁石粉末にフェライト磁石粉末を配合混合しない以外は実施例1と同一の製造条件にて異方性ボンド磁石を作成し、得られた異方性ボンド磁石の磁気特性、角型性および空孔率と耐候性試験結果を表2に表す。

[0033]

組成 No.	組成(at%)				
	R	Fe	Co	B	添加物
1	Nd 12.8	71.2	10.0	6.0	
2	Nd 12.8	65.2	15.0	6.0	Ga 1.0
3	Nd 10 Pr 3	70.0	11.0	6.0	
4	Nd 13	75.0	5.0	3.0	Ga 1.0 C 3.0

[0034]

* * [表2]

		ボンド磁石の磁気特性			角型性 (kOe)	空孔率 (%)	耐候性試験後の 永久的な減磁(%)
		Br(kG)	(BH) _{max} (MGoe)	iHc(kOe)			
実 施 例	1	9.30	17.9	12.21	4.35	2.7	-5.3
	2	9.30	18.5	12.94	5.17	2.0	-3.5
	3	9.09	17.5	13.29	4.93	2.9	-5.6
	4	8.91	16.5	12.08	4.27	2.2	-4.2
実 施 例	1	9.80	17.9	12.19	4.31	3.0	-5.5
	2	9.33	18.8	12.89	5.10	2.5	-3.9
	3	9.07	17.4	13.27	4.91	2.8	-5.7
	4	8.92	16.5	12.06	4.22	2.2	-4.8
比 較 例	1	9.28	17.8	12.16	4.22	8.5	-12.1
	2	9.28	18.3	12.81	4.83	8.2	-10.4
	3	9.07	17.3	13.21	4.70	8.6	-12.9
	4	8.90	16.3	11.96	4.16	8.5	-11.6

[0035]

【発明の効果】この発明による異方性ボンド磁石は、R-F_e-B系合金鉄塊あるいは前記鉄塊を粉碎して得られた粗粉碎粉を、特定の熱処理条件のH_i処理法により、特定の平均再結晶粒径を有する正方晶のR₂F_e₁、B相の再結晶粒集合組織を有する異方性磁石粉末となし、所定量の微細なフェライト磁石粉末とバインダーの樹脂を配合混合後、成形して得られたもので、実施例に明らかなように、耐熱性、耐候性並びに磁気特性にすぐれている。

【図面の簡単な説明】

【図1】混合したフェライト磁石粉末（平均粒度4.4 μ m）の量（wt%）と得られたボンド磁石の磁気特性

30 との関係を示すグラフである。

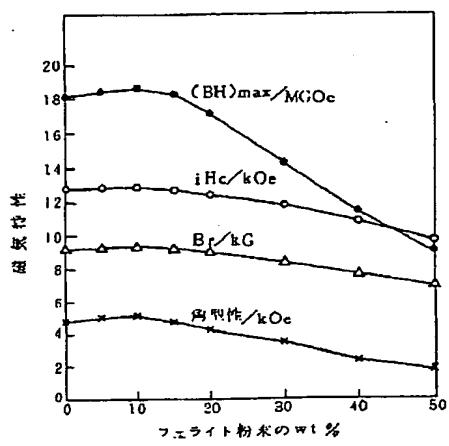
【図2】混合したフェライト磁石粉末（平均粒度4.4 μ m）の量（wt%）と得られたボンド磁石の空孔率（%）及び耐候性試験後の永久減磁率（%）との関係を示すグラフである。

【図3】10wt%混合したフェライト磁石粉末の平均粒径（ μ m）と得られたボンド磁石の磁気特性との関係を示すグラフである。

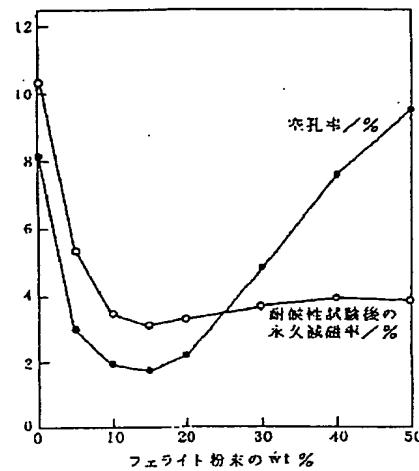
【図4】10wt%混合したフェライト磁石粉末の平均粒径（ μ m）と得られたボンド磁石の空孔率（%）及び耐候性試験後の永久減磁率（%）との関係を示すグラフである。

40

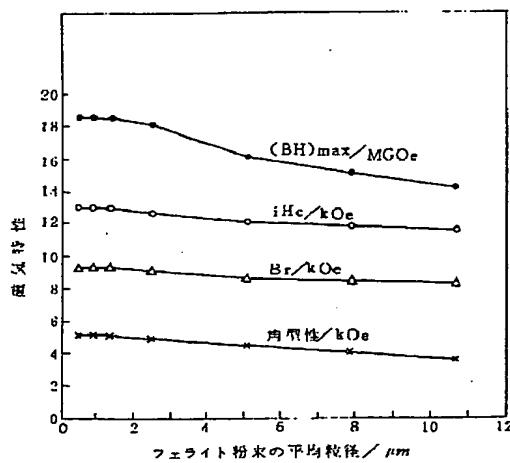
【図1】



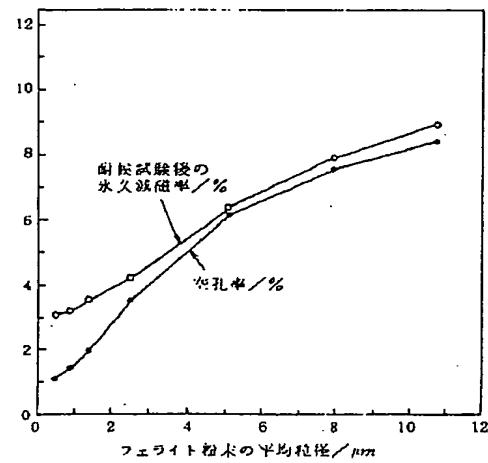
【図2】



【図3】



【図4】



**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning
Operations and is not part of the Official Record**

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- BLACK BORDERS**
- IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES**
- FADED TEXT OR DRAWING**
- BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING**
- SKEWED/SLANTED IMAGES**
- COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS**
- GRAY SCALE DOCUMENTS**
- LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT**
- REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY**
- OTHER:** _____

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.